

Deutsches Patent- und Markenamt

München, den 31.05.2006

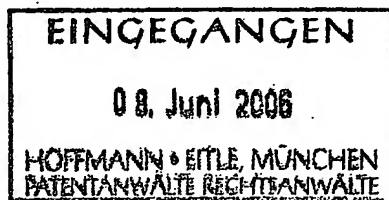
Telefon: (0 89) 21 95 - 3058

Aktenzeichen: 103 48 790.5-54

Anmelder: KOITO MANUFACTURING Co Ltd.

Deutsches Patent- und Markenamt · 80297 München

Patentanwälte
Hoffmann & Eitle
Arabellastr. 4
81925 München



Ihr Zeichen: 100 611 a/scho

Bitte, Aktenzeichen und Anmelder bei
allen Eingaben und Zahlungen angeben

Zutreffendes ist angekreuzt ☒ und/oder ausgefüllt!

Prüfungsantrag, Einzahlungstag am 21.10.2003

Eingabe vom

eingegangen am

Die Prüfung der oben genannten Patentanmeldung hat zu dem nachstehenden Ergebnis geführt.
Zur Äußerung wird eine **Frist von**

4 Monat(en)

gewährt. Die Frist beginnt an dem Tag zu laufen, der auf den Tag des Zugangs des Bescheids folgt.

Für Unterlagen, die der Äußerung gegebenenfalls beigelegt werden (z.B. Beschreibung, Beschreibungsteile, Patentansprüche, Zeichnungen), sind je zwei Ausfertigungen auf gesonderten Blättern erforderlich. Die Äußerung selbst wird nur in einfacher Ausfertigung benötigt.

Werden die Beschreibung, die Patentansprüche oder die Zeichnungen im Laufe des Verfahrens geändert, so hat der Anmelder, sofern die Änderungen nicht vom Deutschen Patent- und Markenamt vorgeschlagen sind, im Einzelnen anzugeben, an welcher Stelle die in den neuen Unterlagen beschriebenen Erfindungsmerkmale in den ursprünglichen Unterlagen offenbart sind.

In diesem Bescheid sind folgende Entgegenhaltungen erstmalig genannt. (Bei deren Nummerierung gilt diese auch für das weitere Verfahren):

- 2 -

Hinweis auf die Möglichkeit der Gebrauchsmusterabzweigung

Der Anmelder einer mit Wirkung für die Bundesrepublik Deutschland eingereichten Patentanmeldung kann eine Gebrauchsmusteranmeldung, die den gleichen Gegenstand betrifft, einreichen und gleichzeitig den Anmeldetag der früheren Patentanmeldung in Anspruch nehmen. Diese Abzweigung (§ 5 Gebrauchsmuster-Gesetz) ist bis zum Ablauf von 2 Monaten nach dem Ende des Monats möglich, in dem die Patentanmeldung durch rechtskräftige Zurückweisung, freiwillige Rücknahme oder Rücknahmefiktion erledigt, ein Einspruchsverfahren abgeschlossen oder - im Falle der Erteilung des Patents - die Frist für die Beschwerde gegen den Erteilungsbeschluss fruchtlos verstrichen ist. Ausführliche Informationen über die Erfordernisse einer Gebrauchsmusteranmeldung, einschließlich der Abzweigung, enthält das Merkblatt für Gebrauchsmusteranmelder (G 6181), welches kostenlos beim Patent- und Markenamt und den Patentinformationszentren erhältlich ist.

**Dokumentenannahme
und Nachbriefkasten
nur
Zweibrückenstraße 12**

Hauptgebäude
Zweibrückenstraße 12
Zweibrückenstraße 5-7 (Breiterhof)
Markenabteilungen:
Cincinnatistraße 64
81534 München

Hausadresse (für Fracht)
Deutsches Patent- und Markenamt
Zweibrückenstraße 12
80331 München

Telefon (089) 2195-0
Telefax (089) 2195-2221
Internet: <http://www.dpma.de>

Zahlungsempfänger:
Bundeskasse Weiden
BBk München
Kto.Nr.: 700 010 54
BLZ: 700 000 00
BIC (SWIFT-Code): MARKDEF1700
IBAN: DE84 7000 0000 0070 0010 54

P 2401.1
1.04

S-Bahnanschluss im
Münchner Verkehrs- und
Tarifverbund (MVG):



Zweibrückenstr. 12 (Hauptgebäude)
Zweibrückenstr. 5-7 (Breiterhof)
S1 - S8 Haltestelle Isartor

Cincinnatistraße:
S2 Haltestelle Fasangarten

BEST AVAILABLE COPY

[1] DE 689 24 801 T2

Aus der Entgegenhaltung [1] ist ein Leuchtenreflektor bekannt (s. Seite 3, Abs. 3),

- der ein Substrat aufweist, das durch Spritzguß einer Spritzgußmasse hergestellt ist (s. Seite 12, letzter Abs.),
- die ein Matrixharz aufweist, das hauptsächlich aus einem ungesättigten Polyesterharz (s. Seite 6, Abs. 2) und Glasfasern als anorganischen Füllstoff (s. Seite 8, Abs. 3-5) besteht ,
- wobei die Spritzgußmasse darüber hinaus hohle Glaskugeln als zusätzlichen, anorganischen Füllstoff enthält (s. Seite 6, letzter Abs.),
- in einer Menge von 10 bis 40 Volumenprozent auf Grundlage der Spritzgussmasse (s. Seite.7, Abs. 2 und Seite 8, Abs. 2).

Der Gegenstand im Patentanspruch 1 ist somit mit allen Merkmalen aus der Entgegenhaltung [1] bekannt. Diesem Gegenstand fehlt demnach die Neuheit, so dass der Patentanspruch 1 nicht gewährt werden kann.

II

Daß Merkmal im Kennzeichnungsteil des Patentanspruchs 2, wonach die Spritzgußmasse einen gesamten Anteil an anorganischem Füllstoff in einem Volumenverhältnis von 1,0 zu 2,5 zum Matrixharz aufweist, ist aus der Entgegenhaltung [1] bekannt (s. Seite 10, Abs. 4, Seite 7, Abs. 2 und Seite 8, Abs. 2).

Das Merkmal im Kennzeichnungsteil des Patentanspruchs 3, wonach die hohlen Glaskugeln einen mittleren Durchmesser von 15 bis 45 µm aufweisen, ist ebenfalls aus der Entgegenhaltung [1] bekannt (s. Seite 7, Abs. 3).

III

Die Erteilung eines Patents kann daher nicht in Aussicht gestellt werden. Es ist vielmehr mit der Zurückweisung der Anmeldung zu rechnen.

Prüfungsstelle für Klasse F21V

Ottmann

Dr. Ottmann
Hausruf: 3493

Anlage:

Ablichtung von 1 Entgegenhaltung

HOFFMANN · EITLE

MÜNCHEN LONDON

Translation of the OFFICIAL ACTION of the German Patent and Trademark Office

Date of the Official Action: May 31, 2006
Date Received: June 8, 2006
Official File Number: 103 48 790.5-54
Applicant: KOITO MANUFACTURING Co Ltd.
H · E File: 100 611 / cse
Date Response is Due: October 8, 2006

Request for examination filed on: October 21, 2003

The further examination of the above-identified patent application led to the result summarized below. A time limit of

4 months

is granted for reply. This time limit commences upon delivery of this Official Action.

All documents (e.g. patent claims, description, parts thereof, drawings) attached to the response should each be filed in duplicate and on separate sheets. The response itself is required in single copy only.

If the patent claims, the description or the drawings are amended during the course of the procedure and the amendments have not been proposed by the Patent Office, the applicant is to state in detail where in the original documents the inventive features described in the new documents are disclosed.

Notice Regarding the Possibility of Branching Off Utility Models

The applicant of a patent application filed with effect in the Federal Republic of Germany can file a utility model application relating to the same application and simultaneously claim the application date of the prior patent application. This branching off (Sec. 5, Utility Model Act) is possible until the expiration of two months after the end of that month in which the patent application has been settled by legal rejection, withdrawal at the applicant's own free will or fictitious withdrawal, an opposition procedure has been concluded, or - in the case of the grant of the patent - the time limit for lodging an appeal against the decision to grant a patent has lapsed without an appeal having been filed. More detailed information in connection with the requirements for a utility model application, including this branching off, is contained in the information sheet for the filing of utility model applications (G 6181) which can be obtained free of charge at the German Patent and Trademark Office and the Patent Information Centres.

- ☒ In this Official Action the following citations are mentioned for the first time (and the consecutive numbers given here will be retained throughout the proceedings):

(1) DE 689 24 801 T2

I

Known from citation (1) is a lamp reflector (cf. page 3, para. 3)

- having a substrate prepared by injection molding an injection molding compound (cf. page 12, last para.),
- comprising a matrix resin mainly consisting of an unsaturated polyester resin (cf. page 6, para. 2) and glass fibers as an inorganic filler (cf. page 8, paras. 3-5),
- the injection molding compound further comprising hollow glass spheres as an additional inorganic filler (cf. page 6, last para.),
- in an amount of 10 to 40 % by volume based on the injection molding compound (cf. page 7, para. 2, and page 8, para. 2).

Therefore, all of the features of the subject matter of patent claim 1 are known from citation (1). Patent claim 1 is thus not allowable owing to a lack of novelty of the subject matter thereof.

II

The feature in the characterizing part of patent claim 2, *i.e.* that the injection molding compound has a total inorganic filler content in a volume ratio of 1.0 to 2.5 to the matrix resin, is known from citation (1) (cf. page 10, para. 4, page 7, para. 2, and page 8, para. 2). The feature in the characterizing part of patent claim 3, *i.e.* that the hollow glass spheres have an average diameter of 15 to 45 μm , is also known from citation (1) (cf. page 7, para. 3).

III

Therefore, grant of a patent cannot be expected. Rather, rejection of the application will have to be expected.

Examiner for Class F 21 V
Dr. Ottmann

Encls.:
copy of 1 citation



①⑨ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ Übersetzung der
europäischen Patentschrift

⑧⑦ EP 0 340 954 B1

⑩ **DE 689 24 801 T 2**

⑥① Int. Cl.⁶:
C 08 L 81/02
C 08 K 7/22

②①	Deutsches Aktenzeichen:	689 24 801.6
⑧⑥	Europäisches Aktenzeichen:	89 304 063.4
⑧⑥	Europäischer Anmeldetag:	24. 4. 89
⑧⑦	Erstveröffentlichung durch das EPA:	8. 11. 89
⑧⑦	Veröffentlichungstag der Patenterteilung beim EPA:	15. 11. 95
④⑦	Veröffentlichungstag im Patentblatt:	4. 7. 96

DE 689 24 801 T 2

③① Unionspriorität: ③② ③③ ③①
25.04.88 JP 102093/88

⑦③ Patentinhaber:
Polyplastics Co. Ltd., Osaka, JP

⑦④ Vertreter:
Patentanwälte von Kreisler, Selting, Werner et col.,
50667 Köln

⑧④ Benannte Vertragsstaaten:
AT, BE, CH, DE, ES, FR, GB, GR, IT, LI, LU, NL, SE

⑦② Erfinder:
Nito, Toshikatsu, Fuji-shi Shizuoka, JP; Tokushige,
Kazutomo, Fuji-shi Shizuoka, JP

⑥④ Polyarylsulfid-Harzzusammensetzung und Formgegenstand für Lichtreflektion.

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patentamt inhaltlich nicht geprüft.

DE 689 24 801 T 2

Anmeldungs-Nr. 89 304 063.4

WK

Veröffentlichungs-Nr. 0 340 954

Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf Polyarylsulfidharz-Zusammensetzungen. Insbesondere bezieht sie sich auf eine Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung, die verbesserte Oberflächeneigenschaften und Fließfähigkeit hat und billig ist, und einen geformten Gegenstand durch Formpressen derselben.

Seit kurzem wird ein thermoplastisches Material als Material für die Komponenten elektrischer oder elektronischer Verwendungen, Automobilteile oder chemischer Instrumente gefordert, das hohe Beständigkeit gegenüber Wärme und Chemikalien hat und flammverzögernd ist. Ein Polyarylsulfidharz, repräsentiert durch ein Polyphenylsulfid, ist eines der Harze, das diese Forderung erfüllt und das gute Kosteneigenschaften hat, so daß die Nachfrage nach ihm gestiegen ist. Allgemein wird dieses Harz mit einer großen Menge eines Füllstoffs vermischt, um die Kosten und das Verwerfen desselben zu reduzieren.

Die so erhaltene Zusammensetzung hat jedoch Nachteile aufgrund des Einflusses des verwendeten Füllstoffs, indem sie einen geformten Gegenstand ergibt, der schlechte Oberflächenglätte hat, und daß sie verminderte Fließfähigkeit und stark erhöhtes spezifisches Gewicht aufweist. Obwohl erwartet worden ist, die Zusammensetzung auf ein Gebiet anzuwenden, daß ausgezeichnete Wärmebeständigkeit und Oberflächeneigenschaften erfordert, z.B. dem Automobil-Lampenreflektor, wurden aus obigen Grund derartige Verwendungen bisher nicht realisiert.

Allgemein werden die folgenden Methoden angewendet, um diese Nachteile zu verbessern:

- (1) Die Verwendung eines Polymers von niedriger Molmasse, das ausgezeichnete Fließfähigkeit hat,
- (2) Die Reduktion der Menge des zuzufügenden Füllstoffs.

Diese Verfahren können jedoch nicht in zufriedenstellendem Maße die Nachteile beseitigen.

D.h. die Methode (1) hat Nachteile, indem die sich ergebende Zusammensetzung verminderte mechanische Festigkeiten aufweist, daß die Methode keine Wirkung auf die Reduzierung des spezifischen Gewichts hat, und daß sie nicht in zufriedenstellendem Maße die Oberflächen-Eigenschaften verbessern kann, während die Methode (2) Nachteile dahingehend hat, daß sie einen geformten Gegenstand ergibt, der eine verminderte Wärmebeständigkeit (wie die Wärmeverformungstemperatur) und Widerstandsfähigkeit gegenüber dem Verwerfen und der Deformation hat, und daß sie eine unvermeidbare Zunahme der Kosten mitsichbringt, obwohl sie zur Verminderung des spezifischen Gewichts wirksam ist.

Kurzbeschreibung der Erfindung

Mit der Absicht die Oberflächeneigenschaften und die Fließfähigkeit einer Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung, insbesondere einer Polyphenylsulfidharz-Zusammensetzung, zu verbessern, ohne die Kosten zu erhöhen, wobei die innewohnende ausgezeichnete Wärmebeständigkeit beibehalten wird, haben die Erfinder der vorliegenden Erfindung viele Zusammensetzungen durch Zugabe einer konstanten Menge eines jeden verschiedenartiger Füllstoffe zu einem Polyarylsulfidharz hergestellt und haben die Auswirkungen derselben untersucht. Als ein

Ergebnis der Untersuchungen haben die Erfinder der vorliegenden Erfindung gefunden, daß eine Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung, die einen spezifischen, hohlen Füllstoff aus Mikrokügelchen enthält, äußerst gut bezüglich der Fließfähigkeit ist und einen geformten Gegenstand ergibt, der insbesondere bezüglich der Oberflächeneigenschaften ausgezeichnet ist, ohne daß sein spezifisches Gewicht um einen unerwünschten Betrag angestiegen wäre. Auf der Basis dieser Ergebnisse wurde die vorliegende Erfindung vervollständigt.

Die vorliegende Erfindung stellt eine Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung bereit, umfassend:

- (A) 100 Gewichtsteile eines Polyarylsulfidharzes und
- (B) 5 bis 400 Gewichtsteile eines gegenüber dem Zerschlagen bei der Verarbeitung widerstandsfähigen, hohlen Füllstoffs aus Mikrokügelchen, der 20 bis 80 Gew.-% SiO_2 und 20 bis 80 Gew.-% Al_2O_3 als Hauptkomponenten umfaßt und ein spezifisches Gewicht von 1,0 bis 2,5 und einen durchschnittlichen Teilchendurchmesser von 1 bis 100 μm hat.

Die Erfindung stellt auch einen geformten Gegenstand für die Lichtreflektion, wie einen Lampenreflektor, bereit, der durch Formen einer wie hierin definierten und beanspruchten Zusammensetzung hergestellt wird.

Weiterhin wurde auch gefunden, daß eine Zusammensetzung, die weiterhin 10 bis 200 Gewichtsteile, vorzugsweise 10 bis 100 Gewichtsteile, eines Füllstoffs, der anders als die Komponente (B) ist, insbesondere Glasfaser, zusätzlich zu den obigen Komponenten (A) und (B) enthält, nicht nur bezüglich der obigen Aspekte, sondern auch in Hinsicht auf die mechanischen Eigenschaften verbessert ist, so daß sie für einige praktische Zwecke brauchbarer ist.

Das als die Basis in der vorliegenden Erfindung zu verwendende Harz (A) ist ein Polyarylensulfidharz, umfassend wenigstens 70 mol % Repetiereinheiten, dargestellt durch die Strukturformel: $-(\text{-Ar-S-})-$ (worin Ar eine Arylgruppe ist). Ein repräsentatives Beispiel desselben ist Polyphenylensulfid, umfassend wenigstens 70 mol % der Struktureinheiten, dargestellt durch die allgemeine Strukturformel: $-(\text{-Ph-S-})-$ (worin Ph eine Phenylengruppe ist) (nachstehend wird das Harz als "PPS" abgekürzt). Insbesondere ist es angebracht, PPS mit einer Schmelzviskosität von 10 bis 20 000, vorzugsweise 100 bis 5000 Poise, bestimmt bei 310 °C mit einer Schergeschwindigkeit von 1200/s, zu verwenden.

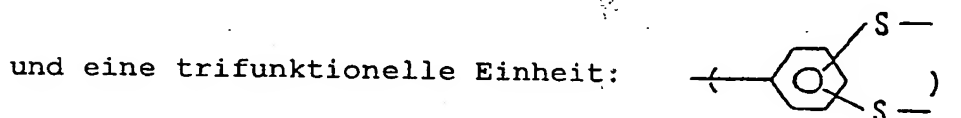
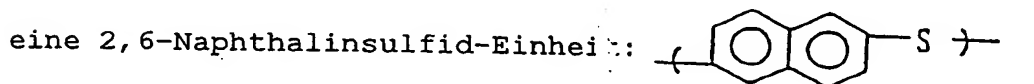
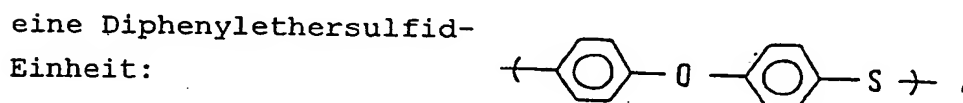
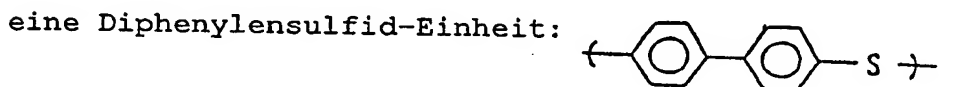
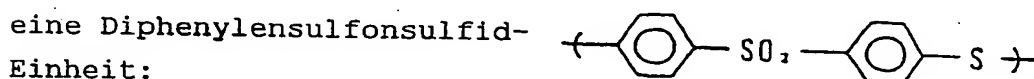
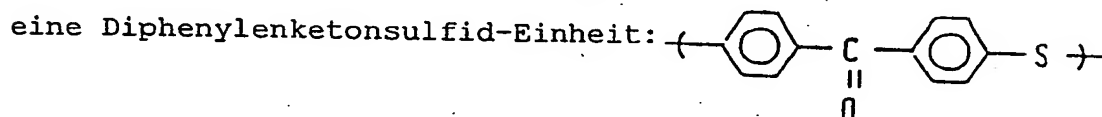
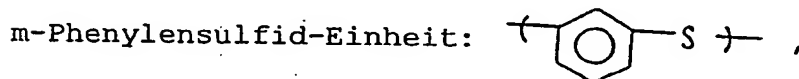
Bekannte Polyarylensulfidharze sind zu einer Gruppe klassifiziert, umfassend im wesentlichen lineare Polyarylensulfidharze, die frei von verzweigter oder vernetzter Struktur sind, und zu einer anderen Gruppe, umfassend Polyarylensulfidharze, die eine verzweigte oder vernetzte Struktur haben, wobei der Unterschied in der Struktur hauptsächlich von dem Herstellungsverfahren stammt. Obwohl jedes Harz jeder Gruppe oder jede Mischung eines Harzes einer Gruppe mit dem Harz einer anderen Gruppe in der vorliegenden Erfindung benutzt werden kann, ist es wirksamer, ein lineares Polyarylensulfidharz zu verwenden, das frei von jeglicher verzweigter Struktur ist.

Bevorzugte Beispiele des in der vorliegenden Erfindung zu verwendenden PPS-Polymers umfassen solche, die wenigstens 70 mol %, noch bevorzugter wenigstens 80 mol %, p-Phenylensulfid-Einheiten: $\text{-(}\text{C}_6\text{H}_4\text{-S-)}$ umfassen.

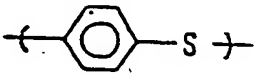
Wenn der Gehalt dieser Einheit geringer als 70 mol % ist, ist die Kristallinität des sich ergebenden Polymers zu gering, um eine genügend hohe Festigkeit zu erlangen, und die Beständig-


keit desselben ist auch gering, obwohl hohe Kristallinität eine Eigenschaft eines kristallinen Polymers ist.


Das in der vorliegenden Erfindung zu verwendende lineare PPS-Polymer kann auch höchstens 30 mol % anderer Comonomer-Einheiten enthalten, und Beispiel derselben umfassen eine



Es ist vom Standpunkt des Vermeidens der Verringerung der Kristallinität bevorzugt, daß der Gehalt einer trifunktionellen Einheit 1 mol % oder weniger ist.

Besonders bevorzugte Beispiele des PPS-Polymers, das in der vorliegenden Erfindung verwendet werden soll, umfaßt ein lineares PPS-Homopolymer, bestehend aus p-Phenylensulfid-Einheiten:  und linearen Blockcopolymeren,

umfassend 70 bis 95 mol % p-Phenylensulfid-Repetiereinheiten:  und 5 bis 30 mol % m-Phenylensulfid-Repetiereinheiten:

sulfid-Repetiereinheiten: 

Das Basisharz der vorliegenden Erfindung kann zusätzlich eine geringe Menge eines anderen thermoplastischen Harzes neben den obigen Komponenten enthalten, sofern der Gegenstand der Erfindung nicht behindert wird. Dieses thermoplastische Harz kann irgendeines sein, sofern es bei hoher Temperatur stabil ist. Beispiele desselben umfassen aromatische Polyester, umfassend Dicarbonsäuren und Diole oder Hydroxycarbonsäuren wie Polyethylenterephthalat und Polybutylenterephthalat, Polyamid, Polycarbonat, ABS, Polyphenylenoxid, Polyalkylacrylat, Polyacetal, Polysulfon, Polyethersulfon, Polyetherimid, Polyetherketon und Fluorharze. Diese thermoplastischen Harze können auch als eine Mischung aus zwei oder mehr derselben verwendet werden.

Der hohle Füllstoff aus Mikrokügelchen, der als die Komponente (B) in der vorliegenden Erfindung verwendet werden soll, ist ein hohles Aluminiumsilicat aus Mikrokügelchen, umfassend 20 bis 80 Gew.-% SiO_2 und 20 bis 80 Gew.-% Al_2O_3 . Der Füllstoff wird allgemein durch Behandlung eines natürlichen Silicats bei hoher Temperatur zu seiner Ausdehnung hergestellt. Allgemein hat ein hohler Füllstoff aus Mikrokügelchen einen hohen Grad an Ausdehnung. Wenn er einem Harz zugegeben wird, weist die erhaltene Harz-Zusammensetzung deshalb das Problem auf, daß

der hohle Füllstoff, der darin enthalten ist, durch Extrusion oder Spritzgießen aufgrund der ungenügenden mechanischen Eigenschaften des Füllstoffs bricht, um einen geformten Gegenstand zu ergeben, der ein variables spezifisches Gewicht hat, obwohl er ein reduziertes spezifisches Gewicht hat. Um dieses Problem zu lösen, haben die Erfinder der vorliegenden Erfindung versucht, die mechanischen Eigenschaften des Füllstoffs durch Verminderung des Grades der Ausdehnung desselben zu verbessern.

Der hohle Füllstoff aus Mikrokügelchen, der in der vorliegenden Erfindung verwendet werden soll, muß nämlich ein spezifisches Gewicht von 1,0 bis 2,5, vorzugsweise 1,8 bis 2,4, haben, um das Zerschlagen desselben beim Verarbeiten zu verhindern.

Allgemein hat ein hohler Füllstoff aus Mikrokügelchen einen Teilchendurchmesser von 1 bis 500 μm . Gemäß der vorliegenden Erfindung ist es vom Gesichtspunkt sowohl der Beständigkeit des Füllstoffs gegenüber dem Zerschlagen als auch den Oberflächeneigenschaften des Füllstoffs und der Fließfähigkeit der Harz-Zusammensetzung aus notwendig, daß der hierin zu verwendende Füllstoff einen Teilchendurchmesser von 1 bis 100 μm , vorzugsweise 2 bis 60 μm , hat.

Wie nachstehend beschrieben ist, hat der in der vorliegenden Erfindung zu verwendende hohle Füllstoff (B) aus Mikrokügelchen eine chemische Zusammensetzung aus einem Aluminiumsilicat, d.h. umfaßt 20 bis 80 Gew.-% SiO_2 und 20 bis 80 Gew.-% Al_2O_3 , vorzugsweise 40 bis 60 Gew.-% SiO_2 und 25 bis 40 Gew.-% Al_2O_3 .

In diesem Zusammenhang ist zu erwähnen, daß die Verunreinigung des Füllstoffs mit einer kleinen Menge eines Oxids oder Hy-

droxids von Fe, Ti, Ca, Mg, K oder dergleichen keine nachteilige Wirkung auf den Gegenstand der vorliegenden Erfindung ausübt.

Die zuzufügende Menge des hohlen Füllstoffs (B) aus Mikrokügelchen ist 5 bis 400 Gewichtsteile, vorzugsweise 10 bis 200 Gewichtsteile, pro 100 Gewichtsteile des zu verwendenden Polyarylsulfidharzes. Wenn die Menge geringer als 5 Gew.-% ist, wird die tatsächliche Verbesserung der physikalischen Eigenschaften wie der Wärmebeständigkeit nicht genügend erreicht, während die mechanischen Eigenschaften auf ungünstige Weise verringert werden, wenn diese 400 Gewichtsteile übersteigt.

Die Zusammensetzung der vorliegenden Erfindung kann weiterhin einen anorganischen oder organischen Füllstoff (C), der ein anderer als die Komponente (B) ist, in Abhängigkeit von seinem Zweck enthalten.

Obwohl der Füllstoff (C) nicht notwendigerweise eine wesentliche Komponente in der vorliegenden Erfindung ist, wird die Zugabe desselben für die Herstellung eines geformten Gegenstandes bevorzugt, der ausgezeichnete mechanische Eigenschaften, Wärmebeständigkeit, Dimensionsstabilität (Beständigkeit gegenüber Deformation und Verwerfen), elektrische Eigenschaften und andere Eigenschaften hat. Der Füllstoff (C) kann aus faserigen, pulverförmigen, körnigen und flockigen Füllstoffen in Abhängigkeit von dem Zweck ausgewählt werden. Es ist besonders bevorzugt, einen faserigen Füllstoff zusammen mit der Komponente (B) zu verwenden.

Die faserigen Füllstoffe umfassen anorganische faserige Materialien, z.B. Glasfaser, Kohlenstofffaser, Asbestfaser, Siliciumdioxidfaser, Siliciumdioxid/Aluminiumoxid-Faser, Aluminium-

umoxidfaser, Zirkoniumdioxidfaser, Bornitridfaser, Siliciumnitridfaser, Borfaser, Kaliumtitanatfaser und Fasern von Metallen wie rostfreiem Stahl, Aluminium, Titan, Kupfer oder Messing. Weiterhin umfassen die faserigen Füllstoffe hochschmelzende organische faserige Materialien und insbesondere umfassen Beispiele derselben Polyamide, Fluorharze und Acrylharze. Unter ihnen ist Glasfaser die repräsentativste.

Die gleichzeitige Verwendung eines faserigen Füllstoffs, insbesondere Glasfaser, mit dem hohlen Füllstoff (B) aus Mikrokügelchen erbringt eine bemerkenswerte Verbesserung der mechanischen Eigenschaften und der Wärmeverformungstemperatur, ohne im wesentlichen irgendeine nachteilige Wirkung auf die erwünschten physikalischen Eigenschaften auszuüben.

Obwohl die in der vorliegenden Erfindung als die Komponente (C) zu verwendende Glasfaser irgendeine konventionelle sein kann, und die Größe derselben nicht speziell eingeschränkt ist, ist es bevorzugt eine Glasfaser zu verwenden, die einen Durchmesser von 3 bis 20 μm und eine Länge von 0,03 bis 15 mm hat.

Obwohl die chemische Zusammensetzung der Glasfaser sowohl ein A-Glas als auch ein E-Glas sein kann, ist es besonders bevorzugt, E-Glas zu verwenden, da es geringerem Auslaugen seiner Komponenten unterliegt, wenn es mit einem Harz geknetet wird.

Alternativ kann die Zusammensetzung der vorliegenden Erfindung einen pulverförmigen, körnigen oder flockigen Füllstoff enthalten, sofern der Gegenstand der vorliegenden Erfindung nicht dadurch beeinträchtigt wird.

Der pulverige oder körnige Füllstoff umfaßt Ruß, Graphit, Siliciumdioxid, Quarz, Glasperle, gemahlene Glasfaser, Glas-

Kügelchen, Glaspulver, Silicate wie Calciumsilicat, Aluminiumsilicat, Kaolin, Talcum, Ton, Diatomeenerde und Wollastonit, Metalloxide wie Eisenoxide, Titanoxid, Zinkoxid, Antimontrioxid und Aluminiumoxid, Metallcarbonate wie Calciumcarbonat und Magnesiumcarbonat, Metallsulfate wie Calciumsulfat und Bariumsulfat, Ferrit, Siliciumcarbid, Siliciumnitrid, Bornitrid und verschiedene Metallpulver.

Der flockige Füllstoff umfaßt Glimmer, Glasflocke und verschiedene Metallfolien.

Die organischen und anorganischen Füllstoffe können allein oder als eine Mischung aus zwei oder mehr derselben als die Komponente (C) verwendet werden.

Die Menge des zuzufügenden Füllstoffs (C) wie Glasfaser ist vorzugsweise höchstens 200 Gewichtsteile, noch bevorzugter 10 bis 180 Gewichtsteile, pro 100 Gewichtsteile des Polyarylen-sulfidharzes. Die Verwendung von mehr als 200 Gewichtsteilen des Füllstoffs (C) ist unvorteilhaft, da die Glasfaser zur Oberfläche des sich ergebenden geformten Gegenstandes heraufwandert, um so schlechte Oberflächen-Eigenschaften zu ergeben.

Vor der Zugabe zu einem Harz kann ein Teil der gesamten Komponenten (B) und (C), die in der vorliegenden Erfindung verwendet werden sollen, mit einem Oberflächenbehandlungs- oder Kupplungsreagenz behandelt werden. Beispiele für das Behandlungs- oder Kupplungsreagenz umfassen funktionelle Verbindungen wie Epoxy-, Isocyanat-, Silan- und Titanat-Verbindungen und andere thermoplastische Harze.

Weiterhin kann die Zusammensetzung der vorliegenden Erfindung vorteilhafterweise ein Additiv enthalten, das auf übliche Weise zu einem thermoplastischen oder wärmehärtbaren Harz, in

Abhängigkeit von der notwendigen Verwendung zugegeben wird. Beispiele eines derartigen Additivs umfassen Stabilisatoren wie Antioxidationsmittel und Ultraviolett-Absorptionsmittel, Antistatikum, Flammverzögerungsmittel, Farbmittel wie Farbstoff oder Pigment, Gleitmittel, Kristallisationsbeschleuniger und Keimbildungsmittel.

Die Polyarylensulfid-Zusammensetzung der vorliegenden Erfindung kann durch ein gebräuchliches Verfahren zur Herstellung einer synthetischen Harz-Zusammensetzung und mit der dafür üblichen Ausrüstung hergestellt werden. Es werden nämlich die notwendigen Komponenten mit einem Einfach- oder Doppelschneckenextruder vermischt, geknetet und extrudiert, um ein Pellet zu ergeben. Bei der Herstellung kann ein Teil der notwendigen Komponenten als ein Masterbatch mit dem Rest derselben vermischt werden, worauf das Formpressen folgt. Um das Dispergieren und Vermischen der notwendigen Komponenten zu erleichtern, kann alternativ dazu ein Teil oder das Ganze der harzförmigen Komponenten vorher gemahlen werden, worauf das Vermischen und die Extrusion folgt.

Die wie oben beschriebene Polyarylensulfid-Zusammensetzung der vorliegenden Erfindung hat die folgenden Vorteile:

- (1) Die Zusammensetzung der vorliegenden Erfindung weist eine niedrige Schmelzviskosität und ausgezeichnete Fließfähigkeit auf, selbst wenn ihr Füllstoffgehalt hoch ist.
- (2) Da der in dem geformten Gegenstand enthaltene Füllstoff hohl ist, ist das spezifische Gewicht des Gegenstandes aufgrund der maximal erlaubten Dichte des hohlen Füllstoffs aus Mikrokügelchen niedrig; dieses niedrige spezifische Gewicht wird in zuverlässiger Weise erreicht, da der Füllstoff gegen-

über dem Zerschneiden während des Formpressens ungleich anderen Hohlfasern beständig ist.

(3) Die Oberflächen-Eigenschaften des Strukturkörpers gemäß der vorliegenden Erfindung sind so hervorragend, daß eine gute Spiegel-Oberfläche durch Aluminiumbeschichten des Körpers erreicht werden kann, und wenn z.B. der Strukturkörper als ein Lampenreflektor verwendet wird, sind die Wärmebeständigkeit, Spiegel-Oberflächeneigenschaften, Steifheit, Feuchtigkeitsbeständigkeit und Lösungsmittelbeständigkeit des sich ergebenden Lampenreflektors wohl ausgeglichen, und

(4) der hohle Füllstoff aus Mikrokügelchen gemäß der vorliegenden Erfindung kann aus natürlichen Substanzen hergestellt werden, so daß die Kosten desselben geringer sind als die von anderen hohlen Füllstoffen, wodurch sich eine Verminderung der Kosten der Zusammensetzung und des geformten Gegenstandes ergibt.

[Beispiele]

Beispiele 1 bis 12 und Vergleichsbeispiele 1 bis 6

Ein hohler Füllstoff (B) aus Mikrokügelchen und ein Glasfaser-Füllstoff (C) wurden zu einem Polyphenylensulfidharz (ein Produkt von Kureha Chemical Industry Co., Ltd.; Warenzeichen "Fortlon KPS") jeweils in einer Menge gegeben, die in Tabelle 1 angegeben ist, worauf zweiminütiges Vermischen erfolgte. Die erhaltene Mischung wurde bei einer Zylinder-Temperatur von 310 °C extrudiert, um ein Pellet einer Polyphenylensulfidharz-Zusammensetzung zu ergeben.

Dieses Pellet wurde unter Verwendung einer Spritzgußmaschine bei einer Zylinder-Temperatur von 320 °C und einer Formtempe-

ratur von 150 °C zu einem ASTM-Teststück geformt. Dieses Teststück wurde auf die physikalischen Eigenschaften hin untersucht.

Die Schmelzviskosität des Teststücks wurde unter Verwendung einer Kapillare (10 mm × 1 mm Durchmesser) und eines Kapillographen, hergestellt von Toyo Seiko, unter den Bedingungen von 310 °C und einer Schergeschwindigkeit von 1200/s bestimmt.

Um die Oberflächenglätte eines geformten Produkts zu bestimmen, wurde das obige Pellet unter Verwendung einer Spritzgußmaschine bei einer Zylinder-Temperatur von 320 °C und einer Formtemperatur von 150 °C zu einer flachen Platte (120 mm × 120 mm × 3 mm) geformt. Diese Platte wurde auf die Abbildungseigenschaften unter Verwendung einer Meßvorrichtung zum Abbilden (hergestellt von Suga Test Instruments Co., Ltd.) unter den Bedingungen eines optischen Kamms von 1,0 mm und einem Reflektionswinkel von 45° hin untersucht.

Weiterhin wurde der Bruchquerschnitt eines geformten Gegenstandes mit einem Elektronenmikroskop beobachtet, um den Bruchgrad des hohlen Füllstoffs aus Mikrokügelchen aufgrund der Extrusion und des Spritzgießens zu bestimmen. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 1 aufgeführt.

Zum Vergleich werden die Ergebnisse der Fälle, in denen andere pulverförmige oder körnige Substanzen anstelle der Komponente (B) verwendet wurden, auch in der Tabelle 1 als Vergleichsbeispiele aufgeführt.

Tabelle 1

	Zusammensetzung			
	(A) PPS-Harz (Gewichtsteile)	(B) anorganischer Füllstoff		(C) Glasfaser (13 µm x 3 mm) (Gewichtsteile)
		Art	Gewichts- teile	
Beispiel 1	100	Zeosphere ^{a)}	5	0
Beispiel 2	100	Zeosphere ^{a)}	25	0
Beispiel 3	100	Zeosphere ^{a)}	70	0
Beispiel 4	100	Zeosphere ^{a)}	100	0
Beispiel 5	100	Zeosphere ^{a)}	150	0
Beispiel 6	100	Zeosphere ^{a)}	400	0
Beispiel 7	100	Zeosphere ^{a)}	100	10
Beispiel 8	100	Zeosphere ^{a)}	125	25
Beispiel 9	100	Zeosphere ^{a)}	100	100
Beispiel 10	100	Zeosphere ^{b)}	100	100
Beispiel 11	100	Zeosphere ^{c)}	100	100
Beispiel 12	100	Zeosphere ^{a)}	30	200
Vergleichsbeispiel 1	100	Glasperlen	150	0
Vergleichsbeispiel 2	100	Glasperlen	100	100
Vergleichsbeispiel 3	100	Calciumcarbonat	100	100
Vergleichsbeispiel 4	100	Glaskügelchen ^{d)}	100	100
Vergleichsbeispiel 5	100	"Shirasu"-Kügelchen ^{e)}	100	100
Vergleichsbeispiel 6	100		0	70

- a) Aluminiumsilicat-Hohlkügelchen, hergestellt von Zeelan, SiO₂: 52 Gew.-%, Al₂O₃: 33 Gew.-%, spezif. Gew.: 2,1, durchschnittl. Teilchendurchm.: 10 µm
b) Aluminiumsilicat-Hohlkügelchen, hergestellt von Zeelan, SiO₂: 54 Gew.-%, Al₂O₃: 30 Gew.-%, spezif. Gew.: 1,9, durchschnittl. Teilchendurchm.: 56 µm
c) Aluminiumsilicat-Hohlkügelchen, hergestellt von Zeelan, SiO₂: 49 Gew.-%, Al₂O₃: 35 Gew.-%, spezif. Gew.: 2,2, durchschnittl. Teilchendurchm.: 5 µm
d) Hohle Glaskügelchen, hergestellt von Asahi Glass Co., Ltd., spezif. Gewicht: 0,58
e) Shirasu (ein weißes quarzartiges Sediment)-Hohlkügelchen: SiO₂: 75 Gew.-%, Al₂O₃: 14 Gew.-%, spezif. Gewicht: 0,30, durchschnittl. Teilchendurchmesser: 200 µm

Tabelle 1 (Fortsetzung)

Eigenschaften des geformten Gegenstandes								
	Zugfestigkeit (kgf/cm ²)	Zugdehnung (%)	Biegefestig- keit (kgf/cm ²)	Biegemodul (kgf/cm ²)	spezif. Gewicht	Schmelzvisko- sität (Poise)	Abbildungseigen- schaften	Zustand des in dem geform- ten Gegenstand vorliegenden Füllstoffs
Beispiel 1	1000	3,6	1200	39 000	1,38	1400	91,2	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 2	930	3,1	1150	72 000	1,46	1720	88,7	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 3	920	2,2	1020	80 000	1,59	1840	83,8	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 4	790	1,2	970	87 000	1,65	1860	80,6	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 5	700	0,7	950	110 000	1,73	2000	73,1	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 6	460	0,4	860	142 000	1,89	4200	39,2	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 7	850	1,1	1010	150 000	1,68	1930	73,6	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 8	940	0,8	1200	166 000	1,75	2490	50,2	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 9	1040	0,8	1610	200 000	1,87	2850	27,6	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 10	970	0,7	1540	189 000	1,85	3000	25,5	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 11	1120	0,8	1620	197 000	1,89	2890	31,2	kein Brechen der Hohl-faser
Beispiel 12	1310	0,6	2200	220 000	1,98	3350	27,5	kein Brechen der Hohl-faser
Vergl.beisp. 1	700	0,6	930	114 000	1,87	3160	38,5	Brechen der Hohl-faser Brechen der Hohl-faser
Vergl.beisp. 2	1270	0,9	2080	192 000	1,95	3850	11,5	
Vergl.beisp. 3	1410	0,9	2100	185 000	2,00	4510	10,2	
Vergl.beisp. 4	1490	1,1	2020	161 000	1,71	2780	12,8	
Vergl.beisp. 5	1400	1,0	1800	158 000	1,90	2620	18,4	
Vergl.beisp. 6	1750	1,6	2500	130 000	1,68	3070	9,8	

Anmeldungs-Nr. 89 304 063.4

WK

Veröffentlichungs-Nr. 0 340 954

P a t e n t a n s p r ü c h e

1. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung, umfassend:
 - (A) 100 Gewichtsteile eines Polyarylsulfidharzes und
 - (B) 5 bis 400 Gewichtsteile eines gegenüber dem Zerschneiden bei der Verarbeitung widerstandsfähigen, hohlen Füllstoffs aus Mikrokügelchen, der 20 bis 80 Gew.-% SiO_2 und 20 bis 80 Gew.-% Al_2O_3 als Hauptkomponenten umfaßt und eine spezifische Dichte von 1,0 bis 2,5 und einen durchschnittlichen Teilchendurchmesser von 1 bis 100 μm hat.
2. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß Anspruch 1, in welcher das Polyarylsulfid (A) ein Polyphenylsulfid ist, das wenigstens 70 Mol-% repetierende Struktureinheiten, dargestellt durch die Strukturformel
-(-Ph-S)-, (worin Ph eine Phenylengruppe ist), umfaßt und eine Schmelzviskosität von 10 bis 20 000 Poise hat, wie sie bei 310°C bei einer Schergeschwindigkeit von 1200/s bestimmt wurde.
3. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß Anspruch 1 oder Anspruch 2, in welcher der Füllstoff (B) eine spezifische Dichte von 1,8 bis 2,4 hat.
4. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß irgendeinem der vorhergehenden Ansprüche, in welcher der Füllstoff (B) einen Teilchendurchmesser von 2 bis 60 μm hat.

5. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß irgendeinem der vorhergehenden Ansprüche, in welcher der Füllstoff (B) 40 bis 60 Gew.-% SiO_2 und 25 bis 40 Gew.-% Al_2O_3 umfaßt.
6. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß irgendeinem der vorhergehenden Ansprüche, welche den Füllstoff (B) in einer Menge von 10 bis 200 Gewichtsteilen pro 100 Gewichtsteile des Polyarylsulfids (A) umfaßt.
7. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß irgendeinem der vorhergehenden Ansprüche, welche weiterhin (C) 10 bis 100 Gewichtsteile eines anderen Füllstoffs als der Komponente (B) zusätzlich zu den Komponenten (A) und (B) enthält.
8. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß Anspruch 7, in welcher der zusätzliche Füllstoff (C) Glasfaser ist.
9. Polyarylsulfidharz-Zusammensetzung gemäß Anspruch 8, in welcher die Glasfaser (C) einen Durchmesser von 3 bis 20 μm und eine Länge von 0,03 bis 15 mm hat.
10. Geformter Gegenstand für Licht-Remission, der durch Formen einer Polyarylsulfid-Zusammensetzung gemäß irgendeinem der vorhergehenden Ansprüche hergestellt wird.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.